## 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

1.9.04.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2003年 3月17日

REC'D 2 4 JUN 2004

WIPO

PCT

出 願 番 号 Application Number:

特願2003-071287

[ST. 10/C]:

[JP2003-071287]

出 願 人 Applicant(s):

宇部興産株式会社

PRIORITY DOCUMENTS
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2004年 6月 2日





ページ: 1/E

【書類名】

特許願

【整理番号】

SHPKS03004

【あて先】

特許庁長官殿

【国際特許分類】

B29C 65/16

【発明者】

【住所又は居所】

山口県宇部市大字小串1978番地の10

宇部興産株式会社 宇部ケミカル工場内

【氏名】

片山 勉

【発明者】

【住所又は居所】 山口県宇部市大字小串1978番地の10

宇部興産株式会社 宇部ケミカル工場内

【氏名】

福井 康治

【特許出願人】

【識別番号】

000000206

【氏名又は名称】 宇部興産株式会社

【代表者】

常見 和正

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

012254

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

要約書 1

【プルーフの要否】

要

### 【書類名】 明細書

【発明の名称】 レーザー溶着用材料及びレーザー溶着方法

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 レーザー光に対して非吸収性である第一樹脂部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材とを重ね合わせ、該第一樹脂部材側からレーザー光を照射して両者をレーザー溶着するためのレーザー溶着用材料であって、第一樹脂部材が第一樹脂と該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂とからなり、第二樹脂部材が第二樹脂とレーザー光に対して吸収性の添加剤とからなることを特徴とするレーザー溶着用材料。

【請求項2】 第一樹脂及び第二樹脂がポリアミドである請求項1記載のレーザー溶着用材料。

【請求項3】 結晶化促進効果を有する樹脂の含有量が、第一樹脂部材100重量部に対し、1~20重量部であることを特徴とする請求項1記載のレーザー溶着用材料。

【請求項4】 第一樹脂部材が、さらにレーザー光に対して弱吸収性の添加剤を 含有することを特徴とする請求項1記載のレーザー溶着用材料。

【請求項5】 レーザー光に対して非吸収性である第一樹脂部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材とを重ね合わせ、該第一樹脂部材側からレーザー光を照射して両者をレーザー溶着するレーザー溶着方法において、第一樹脂部材が第一樹脂と該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂とからなり、第二樹脂部材が第二樹脂とレーザー光に対して吸収性の添加剤とからなることを特徴とする樹脂部材のレーザー溶着方法。

## 【発明の詳細な説明】

## [0001]

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、レーザー光を照射して樹脂部材を溶着させるレーザー溶着用材料及びレーザー溶着方法に関する。

## [0002]

## 【従来の技術】

従来、樹脂部材同士を接合する方法として、接着剤を用いる方法、熱板溶着、 振動溶着、超音波溶着、スピン溶着等の溶着方法、最近ではDRI、DSI等の 射出溶着方法やレーザー溶着方法が知られている。

### [0003]

接着剤による接合方法は、作業者の手作業によるものであるため、非効率的な作業となる。また、安定的な接合強度を得ることができず、樹脂部材の種類によっては十分な接着力が得られないという問題がある。さらに、環境汚染の問題もある。

熱板溶着はサイクルが長く、充填物があったり、吸水状態では溶着できないとい欠点がある。振動溶着は振動により溶着部が1~2mm動くため精密部品には適さない、バリが発生してフィルター等の目詰まりの原因になる、そりがあると溶着しにくい等の欠点がある。超音波溶着は溶着強度が低い、気密性に乏しい、小さいものしか適応できない等の欠点がある。スピン溶着は円形のものしか適用できず、充填物があったり、吸水状態では溶着できないとい欠点がある。

また、最近インテークマニホールドで採用されている射出溶着方法の1つであるDRI、DSIは溶着強度は高いが、金型代が高く、成形機の改造が必要であり、材料の流動性が特に良くないと使用できない等の欠点がある。

## [0004]

一方、レーザー溶着は、レーザー光に対して非吸収性の樹脂部材と、レーザー 光に対して吸収性の樹脂部材とを当接させて溶着させる溶着方法である。これは 、非吸収性の樹脂部材側からレーザー光を接合面に照射して、接合面を形成する 吸収性を示す樹脂部材をレーザー光のエネルギーで溶融させ接合する方法である (例えば、特許文献1、特許文献2参照)。

したがって、レーザー光に対して非吸収性の樹脂部材と、レーザー光に対して吸収性の樹脂部材の当接面にレーザー光のエネルギーを十分に吸収させて当接面を十分に加熱溶融させれば、高い接合強度が得られるはずである。

しかしながら、実際には、単純にレーザー光の照射量を多くしても接合強度が 十分には向上せず、逆にレーザー光の照射量が多すぎて樹脂材料が蒸発したり、 変質して接合強度が低下するという問題があった。 [0005]

#### 【特許文献1】

特開昭60-214931号公報

#### 【特許文献2】

特公平5-42336号公報

[0006]

### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記実状を鑑みてなされたものであり、レーザー溶着方法による樹脂部材の接合において樹脂部材同士を強固に接合させることができるレーザー溶着用材料及びレーザー溶着方法を提供することを課題とする。

#### [0007]

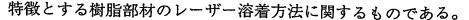
#### 【課題を解決する手段】

上記課題を解決するために本発明者等は、第一樹脂部材と第二樹脂部材を強固に接合できるレーザー光を用いた接合方法について検討を重ねた結果、レーザー光を照射する側の第一樹脂部材として、第一樹脂に該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂を含有させた樹脂部材を使用することにより、両者を強固に接合できることを見出した。

### [0008]

すなわち、本発明は、レーザー光に対して非吸収性である第一樹脂部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材とを重ね合わせ、該第一樹脂部材側からレーザー光を照射して両者をレーザー溶着するためのレーザー溶着用材料であって、第一樹脂部材が第一樹脂と該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂とからなり、第二樹脂部材が第二樹脂とレーザー光に対して吸収性の添加剤とからなることを特徴とするレーザー溶着用材料に関するものである。

また、本発明は、レーザー光に対して非吸収性である第一樹脂部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材とを重ね合わせ、該第一樹脂部材側からレーザー光を照射して両者をレーザー溶着するレーザー溶着方法において、第一樹脂部材が第一樹脂と該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂とからなり、第二樹脂部材が第二樹脂とレーザー光に対して吸収性の添加剤とからなることを



#### [0009]

レーザー溶着のメカニズムは、レーザー光を非吸収性である第一樹脂部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材の接合面に照射して、接合面を形成する吸収性を示す第二樹脂部材をレーザー光のエネルギーで溶融させ、この時の熱が第一樹脂部材に伝達して第一樹脂部材も溶融する。この時、溶融時の体積膨張による圧力が加わることで、接合部の接合強度が高くなる。

本発明においては、第一樹脂部材は、第一樹脂に該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂を含有させているので結晶化開始温度が高くなっている。このため、接合面において、前記溶融時の体積膨張による圧力が高い時点で第一樹脂の結晶化が始まるので、接合部において樹脂部材同士が十分に互いに絡み合った状態となり、接合強度が著しく向上する。

#### [0010]

#### 【発明の実施の形態】

本発明のレーザー溶着用材料は、レーザー光に対して非吸収性である第一樹脂 部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材とからなる。

#### [0011]

第一樹脂部材は、第一樹脂と該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂と からなる。

第一樹脂部材を形成する第一樹脂としては、レーザー光に対して十分な吸収性を示さない樹脂であればどのような種類の樹脂を用いてもよい。たとえば、ポリアミド、ポリプロピレン、スチレンーアクリロニトリル共重合体をあげることができる。また、必要に応じて、ガラス繊維やカーボン繊維等の補強繊維を添加したものを用いてもよい。

#### [0012]

ここで、十分な吸収性とは、レーザー光を受けた部分がレーザー光を吸収し、 その部分が溶融するような吸収性をいう。したがって、十分な吸収性を示さない とは、たとえばわずかなレーザー光の吸収があっても、大部分が透過し、その部 分の樹脂が溶融しない吸収性をいう。

#### [0013]

第一樹脂として用いられるポリアミドは、ジアミンと二塩基酸とからなるか、 またはラクタムもしくはアミノカルボン酸からなるか、またはこれらの2種以上 の共重合体からなるものが挙げられる。

## [0014]

ジアミンとしては、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、オクタメチレンジアミン、ノナメチレジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン等の脂肪族ジアミンや、メタキシリレンジアミン等の芳香族・環状構造を有するジアミンが挙げられる。

ジカルボン酸としては、アジピン酸、ヘプタンジカルボン酸、オクタンジカルボン酸、ノナンジカルボン酸、ウンデカンジカルボン酸、ドデカンジカルボン酸等の脂肪族ジアミンやテレフタル酸、イソフタル酸等の芳香族・環状構造を有するジカルボン酸が挙げられる。

#### [0015]

ラクタムとしては、炭素数  $6 \sim 12$ のラクタム類であり、また、アミノカルボン酸としては炭素数  $6 \sim 12$ のアミノカルボン酸である。6 — アミノカプロン酸、7 — アミノヘプタン酸、11 — アミノウンデカン酸、12 — アミノドデカン酸、 $\alpha$  — ピロリドン、 $\alpha$  — カプロラクタム、 $\alpha$  — ラウロラクタム、 $\alpha$  — エナントラクタム等が挙げられる。

### [0016]

第一樹脂に含有される該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂としては、第一樹脂の結晶化速度を速める効果を有するものであれば、特に制限はなく、一般に、第一樹脂の凝固点(Tc)よりも高い凝固点(Tc)を有する樹脂であればよい。例えば、第一樹脂がポリアミド12である場合には、ポリアミド6、ポリアミド66等が挙げられる。

## [0017]

また、結晶化促進効果を有する樹脂の含有量は、第一樹脂部材100重量部に対し、1~20重量部、特に5~15重量部であることが好ましい。含有量が1重量%よりも少ないと、第一樹脂の結晶化開始温度を高くする効果が得られず、

接合部の接合強度が向上しない。また、含有量が20重量%を超えると、母材の 剛性、耐衝撃性及び流動性などの物性が大きく変化するため好ましくない。

#### [0018]

第一樹脂部材は、さらにレーザー光に対して弱吸収性の添加剤を含有すること が好ましい。

第一樹脂部材に含有されるレーザー光に対して弱吸収性の添加剤としては、レーザー光の波長に共振して、レーザー光の一部を吸収し、一部を透過する材料であればよい。特にレーザー光に対して40~90%の透過率を有するものが好ましい。なお、前記レーザー光に対する透過率は、弱吸収性の添加剤をASTM1号ダンベルの形状に成形したものについて測定した数値である。

#### [0019]

また、弱吸収性の添加剤の含有量は、第一樹脂部材に対し、0.1~5重量%であることが好ましい。含有量が0.1重量%よりも少ないと、レーザー光のエネルギーを吸収することによる発熱が少ないため、第一樹脂部材の温度が十分にあがらず、接合部の接合強度が低くなる。また、含有量が5重量%を超えると、曲げ弾性率等の物性が低下したり、十分な溶着強度を得るためにより多くのレーザー光のエネルギーが必要になるので好ましくない。

## [0020]

弱吸収性の添加剤としては、例えば、エチレンと他のオレフィン類やビニル系化合物との共重合体(以下、エチレン系共重合体という)、スチレンと、共役ジェン化合物との共重合体を水素添加してなるブロック共重合体(以下、スチレン系共重合体という)、かかるエチレン系共重合体、スチレン系共重合体に $\alpha$ ,  $\beta$  一不飽和カルボン酸もしくはその誘導体を付加させた変性エチレン系共重合体、変性スチレン系共重合体が挙げられる。

## [0021]

エチレン系共重合体としては、エチレン・ $\alpha$  ーオレフィン系共重合体、エチレン・ $\alpha$  ,  $\beta$  一不飽和カルボン酸共重合体、エチレン・ $\alpha$  ,  $\beta$  一不飽和カルボン酸エステル系共重合体、アイオノマーなどを挙げることができる。

### [0022]

エチレン・ $\alpha$ ーオレフィン系共重合体とは、エチレンと炭素数 3 以上の  $\alpha$ ーオレフィンを共重合した重合体であり、炭素数 3 以上の  $\alpha$ ーオレフィンとしては、プロピレン、ブテンー 1、ヘキセンー 1、デセンー 1、4 ーメチルブテンー 1、4 ーメチルペンテンー 1 が挙げられる。

### [0023]

エチレン・ $\alpha$ , $\beta$ -不飽和カルボン酸系共重合体とは、エチレンと $\alpha$ , $\beta$ -不飽和カルボン酸単量体を共重合した重合体であり、 $\alpha$ , $\beta$ -不飽和カルボン酸単量体としては、アクリル酸、メタクリル酸、エタクリル酸、無水マレイン酸等を挙げることができる。

### [0024]

エチレン・ $\alpha$ ,  $\beta$  - 不飽和カルボン酸エステル系共重合体とは、エチレンと  $\alpha$  ,  $\beta$  - 不飽和カルボン酸エステル単量体を共重合した重合体であり、 $\alpha$ ,  $\beta$  - 不飽和カルボン酸エステル単量体としては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸プロピル、アクリル酸プチルなどのアクリル酸エステル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸プロピル、メタクリル酸ブチルなどのメタクリル酸エステル等を挙げられる。

## [0025]

アイオノマーとは、オレフィンと $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸共重合体のカルボキシル基の少なくとも一部が金属イオンの中和によりイオン化されたものである。オレフィンとしてはエチレンが好ましく用いられ、 $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸としてはアクリル酸、メタクリル酸等が用いられる。金属イオンはナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム、亜鉛等のイオンを挙げることできる。

## [0026]

## [0027]

共役ジエン化合物としては、例えばブタジエン、イソプレン、1,3-ペンタジエン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエンなどが挙げられる。

スチレン系共重合体としては、水添スチレンーブタジエンースチレン共重合体 (SEBS)、水添スチレンーイソプレンースチレン共重合体 (SEPS) 等が挙げられる。

#### [0028]

変性エチレン系共重合体、変性スチレン系共重合体は、前記に規定したエチレン系共重合体、スチレン系共重合体に $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸基またはその誘導体基を含有する化合物を溶液状態もしくは溶融状態において付加することによって得られる。これら変性エチレン系共重合体、変性スチレン系共重合体の製造方法としては、例えば押出機中で、ラジカル開始剤存在下、エチレン系共重合体、スチレン系共重合体とカルボン酸基またはその誘導体基を含有する化合物とを反応させる方法がある。

#### [0029]

α, β-不飽和カルボン酸またはその誘導体(以下単に不飽和カルボン酸という)としては、アクリル酸,メタクリル酸,エタクリル酸,マレイン酸,フマル酸あるいはこれらの酸の無水物またはエステルなどを挙げることができる。

## [0030]

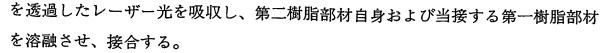
第一樹脂には、レーザー光に対して非吸収性の着色材を添加してもよい。例えば、アンスラキノン系染料、ペリレン系、ペリノン系、複素環系、ジスアゾ系、モノアゾ系等の有機系染料をあげることができる。また、これらの染料を混合させて用いてもよい。

また、第一樹脂には、無機または有機充填剤、耐熱剤、耐候剤、離型剤、滑剤 、帯電防止剤、難燃剤、難燃助剤等の機能性付与剤を添加してもよい。

## [0031]

第二樹脂部材は、第二樹脂と第二樹脂に分散したレーザー光に対して吸収性の添加剤とからなる。

このため、レーザー光が照射されたとき、レーザー光が吸収され、第二樹脂部材を溶融する。すなわち、本発明のレーザー溶着方法においては、第一樹脂部材



#### [0032]

第二樹脂部材を形成する第二樹脂としては、レーザー光に対して十分な吸収性を示す樹脂であればどのような種類の樹脂を用いてもよい。たとえば、ポリアミド、ポリプロピレン、スチレンーアクリロニトリル共重合体等の樹脂や、これらの樹脂をガラス繊維、カーボン繊維で強化した樹脂等をあげることができる。

#### [0033]

また、上記以外の成分、たとえば、無機または有機充填剤、耐熱剤、耐候剤、 離型剤、滑剤、帯電防止剤、難燃剤、難燃助剤等の機能性付与剤を添加してもよ い。

#### [0034]

第二樹脂部材におけるレーザー光に対して吸収性を有する添加剤としては、カーボンブラック、複合酸化物系顔料等の無機系着色材、フタロシアニン系顔料、ポリメチン系顔料等の有機系着色材が用いられる。

### [0035]

第二樹脂部材は、照射されるレーザー光に対して5%以下の透過率を有することが好ましい。透過率が5%を超えて大きくなると、照射されたレーザー光が透過することにより第二樹脂部材に吸収されるレーザー光のエネルギーが減少するとともに、レーザー光のエネルギーのロスが生じるようになるためである。

### [0036]

また、本発明のレーザー溶着方法においては、上記第一樹脂部材と第二樹脂部材とを重ね合わせ、この重ね合わせ部に第一樹脂部材側からレーザー光を照射して両者をレーザー溶着する。

第一樹脂部材側からレーザー光を照射することで、レーザー光に対して非吸収性の第一樹脂部をレーザー光が透過する。透過したレーザー光は、第二樹脂部材表面に到達し、エネルギーとして蓄積される。この蓄積されたエネルギ分布は、レーザー光があらかじめ持っていたエネルギー分布に対して第一樹脂部材の透過の際の散乱によって、不均一なエネルギー分布となる。そして、接合面において

は、不均一なエネルギー分布を持った加熱、溶融が行われるため、第一樹脂部材および第二樹脂部材が互いに絡み合った状態の接合部が生じ、得られる接合体の接合部が強固になる。

#### [0037]

さらに、第一樹脂部材及び第二樹脂部材を同色の着色剤で着色することにより、同色同士の樹脂を接合することができるようになり、接合された樹脂部材の見た目をよくすることができる。

### [0038]

レーザー溶着に用いられるレーザー光としては、ガラス:ネオジム3+レーザー、 YAG:ネオジム3+レーザー、ルビーレーザー、ヘリウムーネオンレーザー、クリプトンレーザー、アルゴンレーザー、 $H_2$ レーザー、 $N_2$ レーザー、半導体レーザー等のレーザー光をあげることができる。より好ましいレーザーとしては、半導体レーザーである。

#### [0039]

レーザー光の波長は、接合される樹脂材料により異なるため一概に決定できないが、400 n m以上であることが好ましい。波長が400 n m より短いと、樹脂が著しく劣化する。

## [0040]

また、レーザー光の出力は、走査速度と第一樹脂部材の吸収能力により調整できる。レーザー光の出力が低いと樹脂材料の接合面を互いに溶融させることが困難となり、出力が高いと樹脂材料が蒸発したり、変質し強度が低下する問題が生じるようになる。

## [0041]

#### 【実施例】

以下、実施例を用いて本発明を説明する。

## 実施例1~3及び比較例1

第一樹脂部材として、ポリアミド12 (宇部興産社製3020B)とポリアミド6 (宇部興産社製1011FB) を表1に記載の割合で混練した樹脂組成物を、ASTM1号ダンベルの形状に成形することにより作製した。



また、得られた樹脂組成物の結晶化開始温度を、パーキンエルマー製DSC装 置(型式:DSC-7)を使用し、窒素ガス雰囲気下で250℃で10分間ホー ルドした後、5℃/minで降温して測定した。

第二樹脂部材として、ポリアミド12 (宇部興産社製3020B)にカーボン ブラックを 0. 3 重量%配合した樹脂組成物を、ASTM 1 号ダンベルの形状に 成形することにより作製した。

次に、第一樹脂部材と第二樹脂部材の先端部を重ね合わせた状態で、半導体レ ーザー装置にセットした。第一樹脂部材からレーザー光を照射して両者を溶着し た。

このとき、レーザー溶着に用いられたレーザー光は、波長が940nmであり 、表1に記載の照射量で照射した。得られた溶着部材の引張強さをASTM D 638に準拠して測定した結果を表1に示す。

### [0042]

#### 【表1】

ļ 		比較例1	実施例1	実施例2	実施例3
第1樹脂	種類	PA12	PA12	PA12	PA12
	(wt%)	100	95	90	85
結晶化 促進樹脂	種類	_	PA6	PA6	PA6
	(wt%)		5	10	15
結晶化開始温度 (℃)		156	159	160	160
レーザー光照射量(J/mm)		1.01	1.01	3.39	3.39
引張強さ (N)		338	408	548	685

## [0043]

## 実施例4~5及び比較例2

第一樹脂部材として、ポリアミド6 (宇部興産社製1015B)とポリアミ ド66(宇部興産社製2020UW1)を表2に記載の割合で用いた他は実施例 1と同様にして、レーザー溶着試験を行った。但し、PA66ブレンド物の結晶 化開始温度は、窒素ガス雰囲気下で280℃で10分間ホールドした後、5℃/



minで降温して測定した。結果を表2に示す。

## [0044]

## 【表2】

ļ	T	比較例2	実施例4	実施例5
第1樹脂	種類	PA6	PA6	PA6
	(wt%)	100	90	85
結晶化 促進樹脂	種類	_	PA66	PA66
	(wt%)		10	15
結晶化開始温度 (℃)		194	200	200
レーザー光照射量(J/mm)		0.85	1.64	0.66
引張強さ (N)		588	670	637

## [0045]

## 【発明の効果】

本発明においては、透過材である第一樹脂部材は、第一樹脂に結晶化促進効果を有する樹脂を含有させているので結晶化開始温度が高くなっている。このため、接合面において、レーザー光のエネルギーで樹脂が溶融する時の体積膨張による圧力が高い時点で第一樹脂の結晶化が始まるので、接合部において樹脂部材同士が十分に互いに絡み合った状態となり、接合強度が著しく向上する。



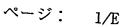
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 レーザー溶着方法による樹脂部材の接合において樹脂部材同士を強固に接合させることができるレーザー溶着用材料及びレーザー溶着方法を提供する

【解決手段】 レーザー光に対して非吸収性である第一樹脂部材とレーザー光に対して吸収性である第二樹脂部材とを重ね合わせ、該第一樹脂部材側からレーザー光を照射して両者をレーザー溶着するためのレーザー溶着用材料であって、第一樹脂部材が第一樹脂と該第一樹脂に対し結晶化促進効果を有する樹脂とからなり、第二樹脂部材が第二樹脂とレーザー光に対して吸収性の添加剤とからなることを特徴とする。

【選択図】 なし





認定・付加情報

特許出願の番号

特願2003-071287

受付番号

50300428127

書類名

特許願

担当官

第六担当上席

0095

作成日

平成15年 3月18日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成15年 3月17日

次頁無



特願2003-071287

# 出願人履歴情報

識別番号

[000000206]

1. 変更年月日 [変更理由] 住 所 氏 名

2001年 1月 4日 住所変更 山口県宇部市大字小串1978番地の96 宇部興産株式会社